

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 07-086036

(43)Date of publication of application : 31.03.1995

(51)Int.Cl.

H01F 10/14
C22C 38/00
G11B 5/31
H01F 41/18

(21)Application number : 05-224440

(71)Applicant :

AMORPHOUS DENSHI DEVICE KENKYUSHO:KK

(22)Date of filing : 09.09.1993

(72)Inventor :

FURUKAWA SHINJI
ONUMA SHIGEHIRO
MATSUMOTO FUMIO
FUJIMORI HIROYASU
MASUMOTO TAKESHI

(54) MAGNETIC THIN FILM AND MANUFACTURE THEREOF

(57)Abstract:

PURPOSE: To provide a magnetic thin film, which is a soft magnetic thin film, which is high in both of electric resistance and saturation magnetization, and is superior in high-frequency characteristics, and a method of manufacturing the magnetic thin film.

CONSTITUTION: The composition of a magnetic thin film is shown by a general formula $Fe_{100-x-y-z}M_xN_yL_z$ (an atomic %), the M is one kind of the element or two kinds or more of the elements, which are selected from among B, B, Mg, Al, Si, Ca, Ti, Y, Zr, Mo, In, Sn, Cs, Ba, La, Hf, Ta, Bi, Pb and W, the L is one kind of the element, which is selected from between O and F, or two kinds of the elements of O and F, the respective atomic ratios of the M and the L are set on the conditions of $5 \leq x \leq 25$, $8 \leq y \leq 25$, $15 \leq z \leq 35$ and $28 \leq x+y+z \leq 50$ and the crystal structure of the magnetic thin film is chiefly a constitution, which consists of a bcc-Fe structure and an oxide phase or a fluoride phase consisting of the M.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

21.02.1994

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

2554445

[Date of registration]

22.08.1996

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

N_y 8-25%
(O, F) 15-35

Copyright (C); 1998,2000 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-86036

(43) 公開日 平成7年(1995)3月31日

(51) Int.Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 F 10/14				
C 2 2 C 38/00	3 0 3 S			
G 1 1 B 5/31		C 9197-5D		
H 0 1 F 41/18				

審査請求 有 請求項の数 5 O L (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願平5-224440
 (22) 出願日 平成5年(1993)9月9日

(71) 出願人 000126942
 株式会社アモルファス・電子デバイス研究
 所
 宮城県仙台市青葉区南吉成6丁目6番地の
 3
 (72) 発明者 古川 伸治
 宮城県仙台市青葉区南吉成6丁目6番地の
 3 株式会社アモルファス・電子デバイス
 研究所内
 (74) 代理人 弁理士 鈴江 武彦

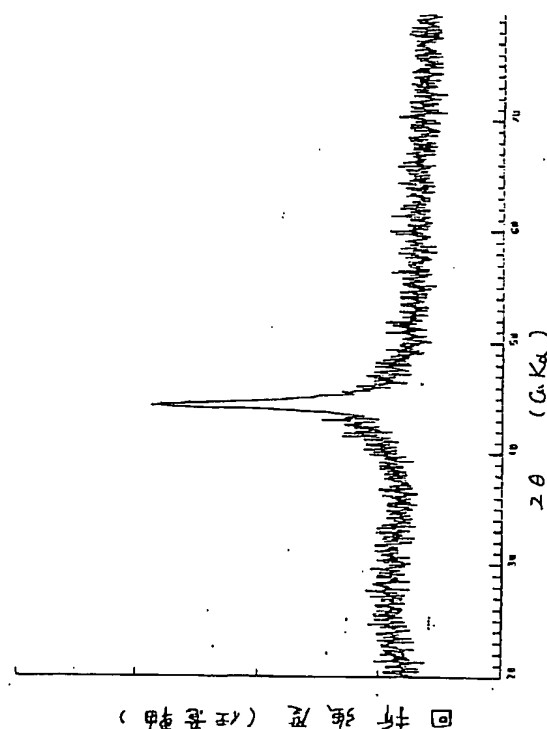
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 磁性薄膜及びその製造方法

(57) 【要約】

【目的】 本発明は、電気抵抗と飽和磁化が共に高い軟磁性薄膜で、高周波特性の優れた磁性薄膜及びその製造方法を提供することを目的とする。

【構成】 本発明は、一般式 $Fe_{100-x-y-z} M_x N_y L_z$ (原子%) で示され、MはBe, B, Mg, Al, Si, Ca, Ti, Y, Zr, Mo, In, Sn, Cs, Ba, La, Hf, Ta, Bi, Pb, Wのうちから選択される1種または2種以上の元素であり、LはO、Fのうちから選択される1種または2種の元素であり、それぞれの原子比率が、 $5 \leq x \leq 25$ 、 $8 \leq y \leq 25$ 、 $15 \leq z \leq 35$ 、 $28 \leq x+y+z \leq 50$ 、であり、その結晶構造が主にbcc-Fe構造とMの酸化物相あるいはフッ化物相からなることを特徴とする。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 一般式 $Fe_{100-x-y-z} M_x N_y L_z$ (原子%) で示され、MはBe, B, Mg, Al, Si, Ca, Ti, Y, Zr, Mo, In, Sn, Cs, Ba, La, Hf, Ta, Bi, Pb, Wのうちから選択される1種または2種以上の元素であり、LはO, Fのうちから選択される1種または2種の元素であり、それぞれの原子比率が、

$$5 \leq x \leq 25$$

$$8 \leq y \leq 25$$

$$15 \leq z \leq 35$$

$$28 \leq x+y+z \leq 50$$

であり、その結晶構造が主にbcc-Fe構造とMの酸化物相あるいはフッ化物相からなることを特徴とする磁性薄膜。

【請求項2】 Feの70%未満がCoで置換されていることを特徴とする請求項1記載の磁性薄膜。

【請求項3】 上記膜がネットワーク状の微細組織を有することを特徴とする請求項1記載の磁性薄膜。

【請求項4】 上記膜が成膜後そのまま結晶質であることを特徴とする請求項1記載の磁性薄膜。

【請求項5】 一般式 $FeMNL$ で示され、MはBe, B, Mg, Al, Si, Ca, Ti, Y, Zr, Mo, In, Sn, Cs, Ba, La, Hf, Ta, Bi, Pb, Wのうちから選択される1種または2種以上の元素であり、LはO, Fのうちから選択される1種または2種の元素であり、その結晶構造が主にbcc-Fe構造とMの酸化物相あるいはフッ化物相からなる高抵抗磁性薄膜を作製するにあたり、スパッタガス中にNを含むガスを添加して異方性磁界の大きさを調節することを特徴とする磁性薄膜の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は高周波域で優れた軟磁気特性を有する電気抵抗および飽和磁化の大きな磁性薄膜およびその製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 近年、電子機器の動作周波数を高める努力が盛んに行われている。しかし、トランスやインダクターあるいは磁気ヘッドなどに用いられている既知の磁性材料には高周波域で十分な特性を有するものはなく、従ってこれら部品の高周波域での使用には制限が多かった。一般に、1MHz以上の高周波域になると磁性材料自体を流れる渦電流により大きな損失が発生する。金属系の磁性材料は電気抵抗が小さいために渦電流損が大きく高周波域で使用することは困難であった。一方、フェライトおよびガーネットなどの酸化物系磁性材料は材料自体の電気抵抗が非常に高いため、渦電流による損失は比較的発生しにくい。しかし、透磁率の大きなものが得にくく、かつ飽和磁束密度が小さいために自然共鳴周波

数が低く、高周波域での使用には制限が多かった。

【0003】 飽和磁束密度が高く、かつ高周波特性の良好な磁性材料に対する期待は大きく、これまでに金属系磁性材料の電気抵抗を高くする方法が提案されている。例えば、金属とセラミックスの同時スパッタリングによりセラミックスが分散した非晶質合金膜を得る方法が特開昭60-152651号公報により提案され、さらに、J. Appl. Phys. 63(8), 15 April 1988 に $Fe-B_4C$ 系分散膜が、J. Appl. Phys. 67(9), 1 May 1990 に $Co_{0.4} Fe_{0.4} B_{0.2} - SiO_2$ 系分散膜が高い比抵抗と軟磁気特性を両立するものとして示されている。また、厚い単層膜では良好な軟磁気特性が得られない $Co_{0.95} Fe_{0.05} - BN$ 系分散膜を0.1μm以下の磁性層とすることで軟磁気特性が得られ、この薄い膜を非磁性中間層を挟んで積層することにより厚い膜でも軟磁気特性が得られることが特開平4-142710号公報に示されている。

【0004】 一方、 N_2 や O_2 ガスによる反応性スパッタリングにより電気抵抗の高い非晶質合金膜を得る方法が特開昭54-94428号公報に開示されている。また、薄膜の作成時に N_2 ガスを添加すると、軟磁気特性の改善に効果があることが多くの合金系で見いだされており、例えばIEEE TRANS. ON MAG. MAG-20 1451 (1984)に開示されている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 高周波域で用いられる磁性材料は、電気抵抗と飽和磁化がともに高いことが求められる。又、加工歪みなどによる軟磁気特性の劣下を最小限にするために、素材の磁歪定数ができるだけ零に近いことが望ましい。しかし、従来から報告されている Fe/B_4C 系分散膜、 $Co_{0.4} Fe_{0.4} B_{0.2} / SiO_2$ 系分散膜はいずれも非晶質相の場合に軟磁気特性が優れていることが示されているが、 10^{-5} 上の非常に大きな正磁歪を有していた。一方、零磁歪と高抵抗を両立する目的で $Co_{0.95} Fe_{0.05} / BN$ 系分散膜が開発されたが、この系は0.1μm以上の厚い単層膜では飽和磁界および保磁力が大きく軟磁性を示さなかった。そこで、非磁性層を介して積層することにより軟磁性が得られることが示されているが、このことは反面で膜全体の飽和磁化を減少させることになり、また工程も複雑になるといった問題点を含んでいた。

【0006】 一方、近年、Fe基合金の結晶粒を微細化することにより磁歪定数の小さな軟磁性材料を開発することが盛んに検討されている。例えば、特開平3-112104号公報にはスパッタリングによって作製された非晶質相を結晶化熱処理することにより、ZrやTaの炭化物が分散したFe合金が得られ、飽和磁歪が小さく軟磁気特性にも優れていることが示されている。この合金薄膜にさらにAlを添加することにより100~200μΩcmの比抵抗が得られることが示されているが、高周波域での渦電流損失を抑制するためには充分とは言え

ず、また高比抵抗のものは飽和磁束密度が小さいという問題点もあった。さらに、これらの薄膜は非晶質合金薄膜を結晶化熱処理する工程を経て使用に供せられるが、この熱処理温度が500℃以上と高温なため、耐熱性のない基板や高温に晒せない素子などには用いることができなかった。

【0007】一方、成膜直後の状態で微細な結晶粒を得るために、NやOを含む雰囲気中でFe基合金を成膜する方法が特開平3-120339号公報などに開示されている。しかし、これらの方法で得られる薄膜の電気比抵抗は高周波域での渦電流損失を抑制し得るほど大きなものではなかった。また、1993年第112回日本金属学会春期大会講演概要集p84(143)にはFeHf合金をO₂を含む雰囲気中でスパッタリングすることにより電気比抵抗が高く軟磁気特性に優れた非晶質合金薄膜が作製され得ることが示されているが、磁歪に関する記載はなかった。

【0008】ところで、高周波域で磁芯損失を発生させる大きな原因は、上述したような渦電流損失の他に共鳴損失がある。この共鳴損失は、飽和磁束密度と異方性磁界が高いほど抑制される。この点から、飽和磁束密度の大きなFe基合金は高周波用磁芯として有望であったが、Co基などと比べて異方性磁界を大きくすることが困難であったことから、十分な高周波特性を有する材料は、これまで報告されていなかった。

【0009】以上のように、電気比抵抗が大きく、磁歪が小さく、厚い単層膜でも良好な軟磁気特性を有する高周波用磁性薄膜材料が求められていた。本発明は上記の点に鑑みてなされたもので、高周波域で優れた軟磁気特性を有する電気比抵抗および飽和磁化の大きな磁性薄膜およびその製造方法を提供することを目的とする。

【0010】

【課題を解決するための手段及び作用】本発明者らは、上記の事情を鑑みて鋭意努力した結果、酸化物系およびフッ化物系のセラミクスとbcc-Feとの複合分散膜により、電気比抵抗が高く、磁歪が小さく、かつ0.1μm以上の厚い単層膜でも良好な軟磁気特性が得られることを見いだした。さらに、これらの薄膜を直流磁界のもとで成膜することにより、一軸磁気異方性を付与し得ることを見いだした。この時の異方性磁界は従来のFe系磁性薄膜では考えられないほど大きく、100 Oeを超えるものであった。これらの膜は、大きな異方性磁界のために自然共鳴周波数が非常に高く、数100MHz以上でも軟磁気特性が劣下しないという優れた特徴を有している反面、透磁率が小さいために応用が限られる欠点も有していた。そこで、本発明者らはこれらの薄膜において異方性磁界の大きさを制御することに鋭意努力した結果、特定量のNを添加することによりそれが達成され得ることを見だし、本発明に至ったものである。

【0011】

【実施例】以下、従来の複合分散膜などとの比較を加えながら、本発明の実施例を説明する。BN, SiC, SiO₂などのセラミクスとFe, Fe合金などの金属を同時にスパッタリングして作製される膜には、透過電子顕微鏡などで詳細に観察すると、成膜後そのままの状態特有のネットワーク状の結晶組織が見いだされる。これは金属を主とする非晶質あるいは結晶質のクラスターをセラミックを主とする粒界相が覆ったものであり、これらの膜が通常の金属薄膜に比べて2~10⁴倍高い電気比抵抗を示すのはこの組織が主因となっている。本発明者らはFeとセラミクスの組み合わせが膜の結晶構造や磁気特性に及ぼす影響について詳細に検討した。その結果以下のことが新たに見いだされた。成膜後のクラスターが非晶質である膜は、高電気比抵抗と軟磁性および10⁻⁵上の大きな正磁歪を示し、この傾向はセラミクスの種類には依らない。一方、クラスターが結晶質であった場合には、セラミクスの種類が磁気特性に大きく影響する。すなわち、BNやSiCなどの窒化物や炭化物からなる複合分散膜の場合は、成膜した状態で結晶質である膜は軟磁性を示さない。一方、非晶質相を熱処理してクラスターがbcc-Fe相に結晶化した薄膜は軟磁性を示し、結晶化とともに飽和磁歪定数が減少し、10⁻⁶台に改善されるが、1k Oe以上の大きな磁界中で熱処理しても一軸磁気異方性を付与しにくく、そのために高周波特性は充分ではない。例えば、Fe-Si₃N₄系では非晶質から結晶化する過程で一軸異方性を失う。また、Fe-AlN系薄膜は非晶質でも熱処理後の結晶膜でも共に等方的な膜しか得られない。数10MHz以上の高周波域では一軸磁気異方性は電気比抵抗以上に重大な役割を担う。すなわち、異方性磁界の小さなものは自然共鳴周波数が低く、また異方性磁界の分散も大きくなりやすいために高損失となり高周波域での使用には適さない。

【0012】それに対して、Feと酸化物またはフッ化物からなる複合分散膜は、クラスターがbcc-Fe相となった膜は成膜したままでも良好な軟磁性を示す。以下、Fe-SiO₂系を例として説明する。SiO₂が多い膜は、炭化物系や窒化物系と同様に非晶質となり、軟磁気特性を示す。また、SiO₂が少ない膜は結晶質となるが、それらのうちで主にbcc-Fe相からなる膜は、成膜したままの状態軟磁性を示す。これらの膜の飽和磁歪は、ともに+10⁻⁶オーダーで炭化物系や窒化物の非晶質膜に比べて小さく、特にbcc-Feを主相とする膜は+3×10⁻⁶度と十分小さい。また、窒化物系や炭化物系とは異なり、これらの膜では成膜中に静磁界を加えることで一軸磁気異方性を容易に付加することができ、このときの異方性磁界は非晶質の膜では15 Oe程度と特に大きなものではないが、bcc-Feを主相とする膜では非常に大きく、100 Oeを超えるものもある。これほどの大きな飽和磁界が優れた軟磁気

特性とともに得られた例はこれまで報告されたことはなかった。この膜の飽和磁束密度は10~18kGと大きいため、理論上の自然共鳴周波数は2GHz以上にもなり、電気比抵抗も100~1000 $\mu\Omega\text{cm}$ と大きいため渦電流損失も少なく、非常に高周波特性に優れたものである。このように、bcc-Feを主相とする膜が軟磁性と大きな異方性を示すことは、Fe-SiO₂系に限られたものではなく、Feと酸化物系あるいはフッ化物系のセラミクスからなる複合分散膜に全般に認められる。ただし、これらは非常に大きな異方性磁界を有するために、非常に高い周波数まで使用できる点で優れたものである一方、透磁率が小さいという問題点も有している。すなわち、高周波帯域では主として回転磁化による磁化過程が支配的であり、その際透磁率は異方性磁界に反比例する。そのため、異方性磁界が100 Oeを超えるほど大きいこれらの膜では透磁率は100程度となってしまう、用途が非常に限定されたものとなってしまう。異方性磁界の大きさは共鳴周波数と透磁率を考慮しながら、適当な大きさに調節できることが望まれるが、これらの膜ではそのような調整ができなかった。

【0013】本発明者らは、Fe-酸化物あるいはFe-フッ化物系のbcc-Feを主相とする薄膜の異方性磁界を調節する方法を見いだすことに鋭意努力した。その結果、これらに特定量のNを添加することにより異方性磁界を調節できることを見だし、本発明に到達したものである。

【0014】本発明は以上の経過の上で達成されらものであり、『一般式 $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{M}_x\text{N}_y\text{L}_z$ (原子%) で示され、MはBe, B, Mg, Al, Si, Ca, Ti, Y, Zr, Mo, In, Sn, Cs, Ba, La, Hf, Ta, Bi, Pb, Wのうちから選択される1種または2種以上の元素であり、LはO, Fのうちから選択される1種または2種の元素であり、それぞれの原子比率が、

$$5 \leq x \leq 25$$

$$8 \leq y \leq 25$$

$$15 \leq z \leq 35$$

$$28 \leq x+y+z \leq 50$$

であり、その結晶構造が主にbcc-Fe構造とMの酸化物相あるいはフッ化物相からなることを特徴とする高抵抗な軟磁性薄膜。』をその主旨とするものである。

【0015】本発明の薄膜は、金属的な結晶質のクラスターをセラミックを主とする粒界相が覆ったネットワーク構造となっている。XPSなどの状態分析により、この粒界の組成はセラミクスターゲットの組成に強く依存しており、また金属クラスターもFe単体ではなく、セラミクスターゲットから与えられたM元素とFeの合金であることが明らかになっている。すなわち、セラミクスターゲットを変えると、金属クラスター相も粒界相も組成が大きく変化する。しかし、本発明においてはMは

Be, B, Mg, Al, Si, Ca, Ti, Y, Zr, Mo, In, Sn, Cs, Ba, La, Hf, Ta, Bi, Pb, Wのうちから選択されるものであれば軟磁気特性を得ることができる。このことは、本発明の薄膜における軟磁気特性の原因を次のように説明すると理解できるであろう。すなわち、高い結晶対称性を有するbcc-Fe相は、セラミクス粒界のネットワーク構造のために粒成長を妨げられて微結晶となっている。適度の大きさの微結晶からなるbcc-Fe合金が、個々の微結晶の磁気異方性がキャンセルされるため軟磁気特性を示すことは、FeNbCuSiB合金などでもよく知られている。本発明の薄膜では、粒界相は主にbcc相を収容する『粹』として働いており、金属相の合金化もbcc相が維持される限りは軟磁気特性が発現すると考えると、組成依存性がないことも理解できる。従って、本発明においては、MとLの組成は主に粒界のネットワーク構造の形成により規定される。ネットワーク構造を作るためには、Mは5原子%以上必要であり、5%未満の場合は軟磁性を得ることができず、25原子%を超えた場合は飽和磁束密度が小さくなりすぎるために好ましくない。LはMの量とその種類により量に変化するが、15原子%未満ではネットワーク構造を作り得ないために好ましくなく、また35原子%を超えると軟磁性が劣下したり高周波域で異常な損失が発生するために好ましくはない。一方、クラスターはbcc-Fe構造を維持できていれば他の元素を固溶していても問題はない。このことはセラミクスターゲットの種類を制限しないとともに、FeターゲットをFe合金ターゲットに変えても、軟磁気特性が得られることを示している。実際、FeをCoで置換してもその置換量がbcc構造を維持できる70%以内であれば軟磁気特性が得られ、飽和磁束密度を大きくすることができる。同様の理由により他の元素であってもbcc構造を阻害しない範囲であれば、Feに添加することは本発明の範囲に含まれるものである。本発明において、Nは異方性磁界を調整する上で非常に重要な作用を示す。すなわちNの量が増えるに従って異方性磁界は減少する。ただしNが8原子%未満では異方性磁界は変化せず、25原子%を超えると軟磁性が阻害されるために適当ではない。本発明において、Nは非晶質形成元素としても作用するため、25原子%を超える添加で非晶質化する。この場合、飽和磁歪定数が10⁻⁵を超える大きなものとなるばかりか、垂直磁気異方性が発生するために軟磁性を失う。膜中のNの添加は、窒化物のターゲットを追加しても行なうことができるが、スパッタガスにNを含むガスを加えることによって調節することができる。すなわち、例えばFe-SiO₂系を10mTorrのスパッタ圧で成膜する場合、スパッタガス中のN₂の流量比を0から5%まで変えることにより、120 Oeからほぼ0 Oe(等方的)まで異方性磁界を連続的に変化させることができる。このことが

ら、本発明の第2の主旨として次の製造方法が導かれた。すなわち、本発明は、『一般式 $FeMNL$ で示され、 M は $Be, B, Mg, Al, Si, Ca, Ti, Y, Zr, Mo, In, Sn, Cs, Ba, La, Hf, Ta, Bi, Pb, W$ のうちから選択される1種または2種以上の元素であり、 L は O, F のうちから選択される1種または2種の元素であり、その結晶構造が主に $bcc-Fe$ 構造と M の酸化物相あるいはフッ化物相からなる高抵抗磁性薄膜を作製するにあたり、スパッタガス中に N を含むガスを添加して異方性磁界の大きさを調節することを特徴とする高抵抗磁性薄膜の製造方法。』をその主旨とするものである。

【0016】本発明の方法において、 N は N_2 や NH_3 などのガスとして添加される。その添加量はターゲット組成やスパッタ圧またはスパッタ電力を考慮して決定されなければならないが、適切に添加すると H_k をコントロールすることができる。添加量が多すぎると非晶質化し、垂直磁気異方性が強くなり軟磁気特性を失うことがあるので注意しなければならない。

【0017】以下、本発明を具体的実施例を用いてさらに詳しく説明する。

【比較例-1】直径4インチで純度が99.9%の Fe 円盤上に、被覆率が30%となるように純度が99.9%の SiO_2 板を扇状に設置した複合ターゲットを、高周波スパッタリングすることにより $Fe-SiO_2$ 薄膜を作製した。成膜条件は以下の表-1のように設定した。

【0018】表-1

スパッタ圧力	1.0×10^{-2} Torr
投入電力	90W
基板温度	20℃ (水冷)
基板	コーニング#7059 厚さ0.5mm
膜厚	2.4 μm
スパッタガス流量	Ar 10CCM
印加磁界	1対の永久磁石 (40 Oe)

得られた試料は理学電気社製X線回折装置RAD-3Aにより組織を同定した。結果を図2に示す。2 θ が44°付近に $bcc-Fe$ の(110)面に対応するブロードな回折ピークが観察される。次に、次に日立製作所社製透過電子顕微鏡H-9000 NARで薄膜の微細組織を観察した結果を図3に示す。粒径が約50オングストロームのクラスターと厚さが数オングストロームの粒界からなるネットワーク状の組織が見られ、この薄膜が2相からなることが認められる。さらに、電子線回折図形からこれらは $bcc-Fe$ 相と SiO_2 に似た化合物相であることが確認された。膜全体の組成をラザフォード後方散乱法で分析したところ、組成は $Fe_{64}Si_{11}O_{24}$ (原子%)であった。次に、アルバックファイ社製X線分光分析装置ESCA-5600により各元素の状態分析を

行なった。 Si_{2p} の結合エネルギーのピークプロファイルから、 Si には、 Fe と結合して金属相を形成しているものと O と結合して SiO_x 相を形成しているものの2種類の状態があることがわかった。このように得られた薄膜は、 bcc 結晶構造となる $FeSi$ を主とする金属相が非晶質的な SiO_x 相により覆われた微細組織であることが確認された。次に、直流磁気特性を理研電子社製試料振動型磁力計BHV-30SSにより測定した。結果を図4に示す。図中の2つのデータは、成膜時の磁界の印加方向に平行(//)、垂直(⊥)に励磁して測定した結果を表わしている。試料は、成膜時に印加した磁界方向が磁化容易軸が平行となる一軸磁気異方性を有しており、その異方性磁界(H_k)は83 Oeと非常に大きいものであった。試料の保磁力(H_c)

は、容易軸方向(H_{ce})が2.0 Oe、困難軸方向(H_{ch})は0.4 Oeと十分小さく、ヒステリシス曲線の直線性が良いことから異方性分散の少ないものであることがわかる。また、飽和磁束密度(B_s)も15.2 kGと十分に大きい。この膜の電気比抵抗(ρ)を直流4端子法により測定したところ、285 $\mu\Omega cm$ と通常非晶質合金に比べても2~3倍高いものであった。次に、困難軸方向の透磁率の周波数特性を横河ヒューレットパッカード社製ネットワークアナライザ4195Aにより、パラレルライン法で測定した。同方法についての詳細な説明は、日本応用磁気学会誌、Vol. 17, No. 2, p497 (1993)に開示されている。結果を図5に示した。膜がかなり厚いにもかかわらず500MHzまで劣下しない良好な周波数特性を示した。これはこの薄膜が、飽和磁束密度と異方性磁界および電気比抵抗が高く、かつ乱れが少なく均質であることから得られるものであり、日本応用磁気学会誌、Vol. 15, No. 2, p327 (1991)に開示されている方法で B_s, H_k, ρ 、膜厚から求めた理論値にほぼ一致した。しかし、 H_k が100 Oe以上と大きいため、透磁率の実数部 μ' は200と小さかった。

【0019】次に、この膜の飽和磁歪定数を成瀬科学器械社製光てこ型飽和磁歪測定装置MS-7により100 Oeの磁場下で測定した。今回の測定では、膜のヤング率を実測することが非常に困難であったため、その値として $FeSiB$ 薄帯の $12 \times 10^3 kg/mm^2$ を採用し計算した。その結果、磁歪は $+3.0 \times 10^{-6}$ と従来の Fe 基の非晶質合金などに比べると1/5~1/10の非常に小さな値を示した。

【比較例-2】直径4インチで純度が99.9%の Fe 円盤上に被覆率が40%となるように Si_3N_4 板を扇状に設置した複合ターゲットを用いて高周波スパッタリングすることにより薄膜を作製した。その他の成膜条件は以下の表-2のように設定した。

【0020】表-2

スパッタ圧力	1.0×10^{-2} Torr
--------	---------------------------

9

投入電力 90W
基板温度 20℃
基板 コーニング#7059 厚さ0.5mm

膜厚 0.8μm
スパッタガス流量 Ar 10CCM

印加磁界 1対の永久磁石 (40 Oe)

得られた薄膜は、図6示したように実施例-1と同様にbcc-Fe相であった。膜の組成をラザフォード後方散乱法で分析したところ、Fe₆₅Si₂₁N₁₄(原子%)であった。この薄膜のVSMによる直流磁気履歴曲線を図7に示す。試料は保磁力が14 Oeと大きく、軟磁気特性も一軸磁気異方性も示さなかった。なお、100 Oeで磁化が飽和しないため飽和磁歪定数は測定できなかった。

【実施例-1】比較例-1の成膜条件で、スパッタガスにN₂を添加しながらFe-SiO₂-N膜を作成した。得られた膜の結晶構造と電磁気特性の測定をを比較例-1と同様におこなった。膜の組成は、ラザフォード後方散乱法で分析した。膜中のN濃度は、N₂ガス流量比が大きくなるにつれて増大した。次に、N濃度と膜の異方性磁界H_kとの関係を図1に示す。H_kはN濃度が約8原子%まではほとんど変化しないが、それ以上ではN濃度が高くなるにつれて減少し、約15.5原子%以上で等方的になった。透磁率μ'はH_kに逆比例して増大した。このようにN₂ガスの添加量により、極めて容易に一軸磁気異方性を制御することができた。

【比較例-3】実施例-2と同様の条件で、スパッタガスのN₂添加比を10%として膜を作成した。ラザフォード後方散乱法で分析した膜の組成はFe₄₉Si₉O₁₅N₂₆(原子%)であった。得られた膜のX線回折図形を図8に示す。約40°付近にブロードなハローが見られ、他にピークがないことから非晶質構造であることが

10

わかる。この膜の直流磁気履歴曲線を図9に示す。保磁力は18 Oeで飽和磁界が252 Oeと非常に大きく軟磁気特性は得られなかった。さらにこの膜に500℃までの磁界中熱処理を施したが、磁気特性は改善されなかった。

【0021】

【発明の効果】以上述べたように、本発明によれば電気抵抗と飽和磁化が共に高い軟磁性薄膜で、高周波特性の優れた薄膜材料を提供することができる。本発明の薄膜は、その異方性磁界を共鳴周波数と透磁率の値を考慮しながら調節することができ、幅広く提供することができる。さらに飽和磁歪定数は10⁻⁶台で小さいため、加工歪などの影響を小さなものにすることができる。さらに本発明の薄膜の異方性磁界の大きさは、本発明の方法により容易に制御できる。この方法は、従来広く行なわれていたような回転磁界中熱処理などの方法と異なり、スパッタ中にガスを添加するだけの至って簡便な方法であり、特別な工程や装置を必要としないため、その工業的意義は大きい。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の合金薄膜において、膜中のN濃度と異方性磁界の関係を示す特性図である。

【図2】合金薄膜の結晶構造を示すX線回折図である。

【図3】合金薄膜の微細構造を示す透過電子顕微鏡の明視野像図である。

【図4】合金薄膜の直流磁気特性を説明するための特性図である。

【図5】透磁率の周波数特性を説明するための特性図である。

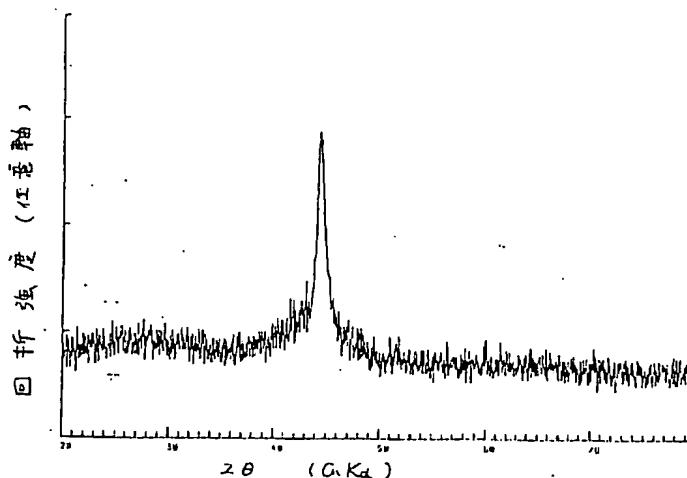
【図6】合金薄膜の結晶構造を示すX線回折図である。

【図7】合金薄膜の直流磁気特性を示す特性図である。

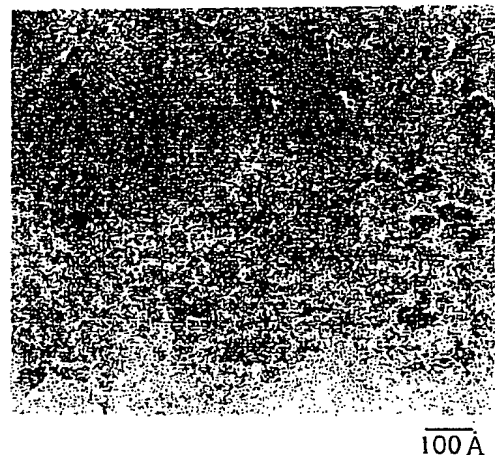
【図8】合金薄膜の結晶構造を示すX線回折図である。

【図9】合金薄膜の直流磁気特性を示す特性図である。

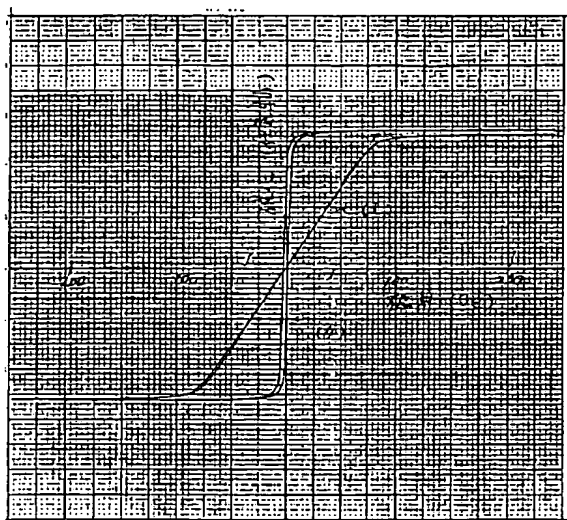
【図1】



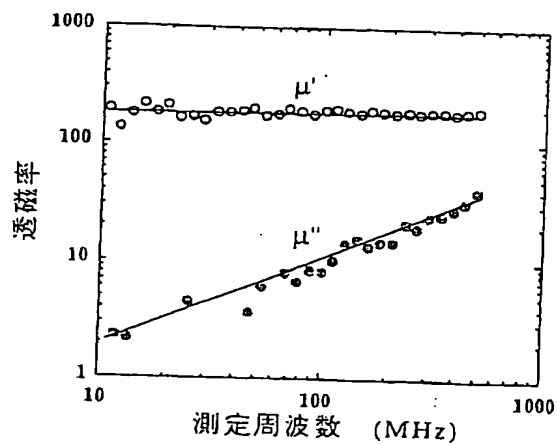
【図2】



【図3】

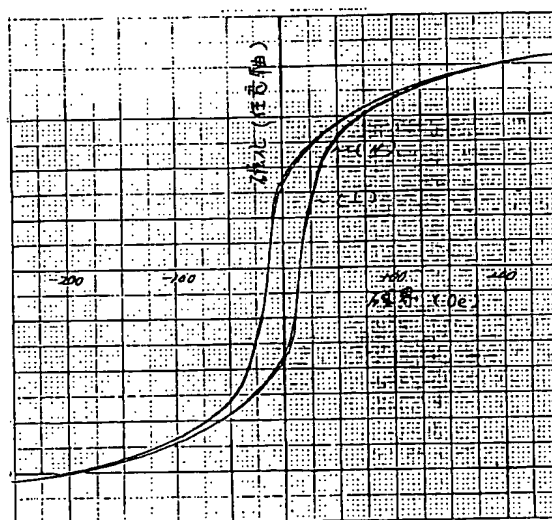
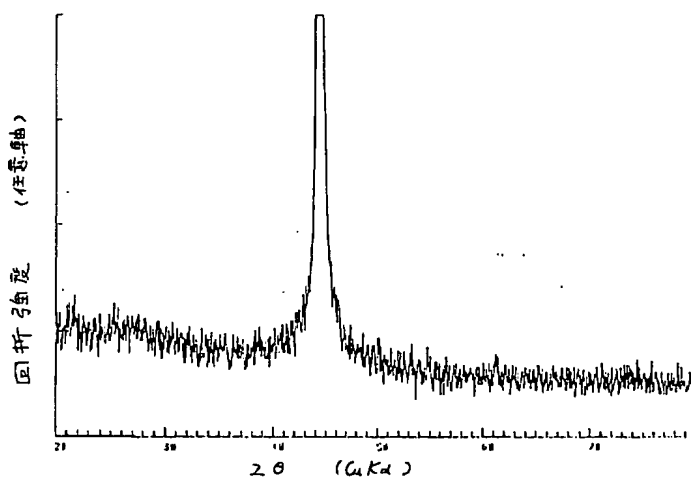


【図4】

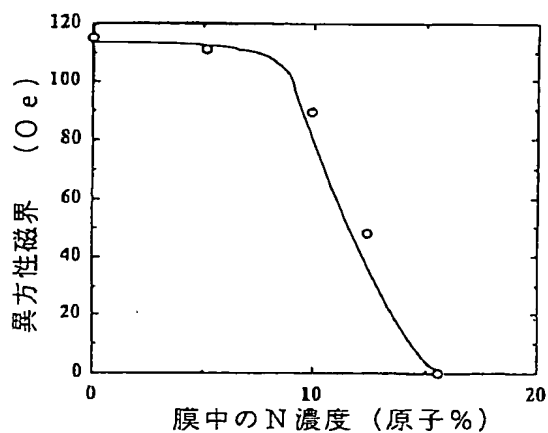


【図6】

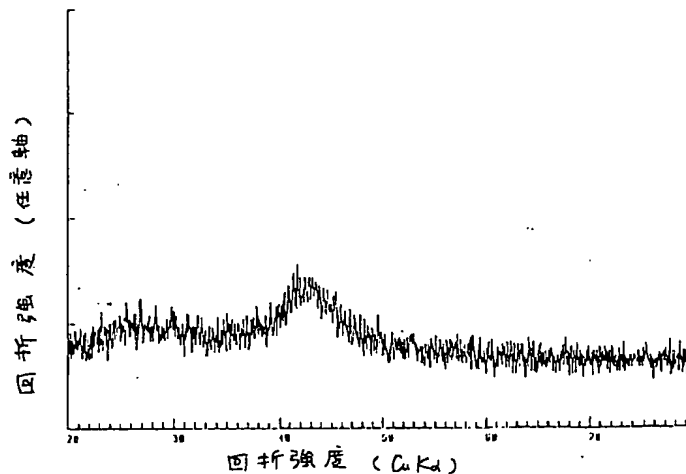
【図5】



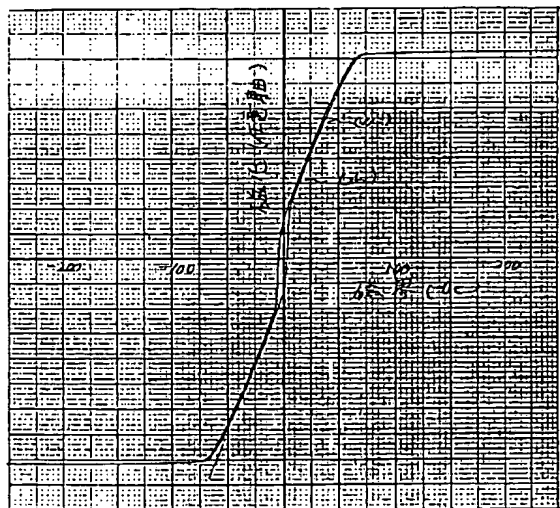
【図7】



【図8】



【図9】



フロントページの続き

(72)発明者 大沼 繁弘
宮城県仙台市青葉区南吉成6丁目6番地の
3 株式会社アモルファス・電子デバイス
研究所内

(72)発明者 松本 文夫
宮城県仙台市青葉区南吉成6丁目6番地の
3 株式会社アモルファス・電子デバイス
研究所内

(72)発明者 藤森 啓安
宮城県仙台市青葉区吉成2丁目20番3号

(72)発明者 増本 健
宮城県仙台市青葉区上杉3丁目8番22号